

Rec'd PCT/PTO 24 SEP 2004

PCT/JP 03/03591

日 本 国 特 許 庁

25.03.03

JAPAN PATENT OFFICE

RECEIVED

11 APR 2003

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

10/508858

出 願 年 月 日

Date of Application:

2002年 3月26日

出 願 番 号

Application Number:

特願2002-085149

[ST.10/C]:

[JP2002-085149]

出 願 人

Applicant(s):

昭和電工株式会社

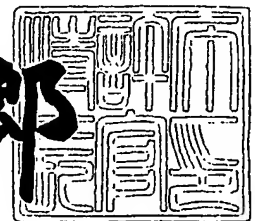
**PRIORITY  
DOCUMENT**

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2003年 2月 7日

特 許 庁 長 官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

太田 信一郎



BEST AVAILABLE COPY 出証番号 出証特2003-3004773

【書類名】 特許願

【整理番号】 11H140088

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 B01D 53/34

【発明者】

    【住所又は居所】 神奈川県川崎市川崎区扇町 5 - 1 昭和電工株式会社  
                        生産・技術統括部内

    【氏名】 堀田 雅敏

【発明者】

    【住所又は居所】 神奈川県川崎市川崎区扇町 5 - 1 昭和電工株式会社  
                        生産・技術統括部内

    【氏名】 跡辺 仁志

【特許出願人】

    【識別番号】 000002004

    【住所又は居所】 東京都港区芝大門 1 - 1 3 - 9

    【氏名又は名称】 昭和電工株式会社

【代理人】

    【識別番号】 100118740

    【住所又は居所】 東京都港区芝大門 1 - 1 3 - 9

    【氏名又は名称】 柿沼 伸司

【手数料の表示】

    【予納台帳番号】 010227

    【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

    【物件名】 明細書 1

    【物件名】 図面 1

    【物件名】 要約書 1

    【包括委任状番号】 0102656

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 反応装置および反応方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 外筒内に熱交換器と、ヒーターを備えた反応容器とを具備し、前記熱交換器の上部が前記反応容器と接続され、前記熱交換器の他端部および外筒の下部がフランジにより固定され、前記熱交換器の他端部に被処理ガスの導入および処理ガスの排出用の二重配管が接続されてなる反応装置。

【請求項 2】 熱交換器がシェルチューブ式熱交換器である請求項 1 に記載の反応装置。

【請求項 3】 外筒が前記フランジを備え、該フランジが接続する外筒の他端部にアイボルト取り付け部を備えている請求項 1 または 2 に記載の反応装置。

【請求項 4】 反応容器が内部にフィンを備えている請求項 1 ～ 3 のいずれかに記載の反応装置。

【請求項 5】 二重配管が内筒と外筒により形成されている請求項 1 ～ 4 のいずれかに記載の反応装置。

【請求項 6】 二重配管の内筒内部および／または内筒と外筒の間にフィンを備えている請求項 1 ～ 5 のいずれかに記載の反応装置。

【請求項 7】 二重配管の外筒に放熱板を備えている請求項 1 ～ 6 のいずれかに記載の反応装置。

【請求項 8】 被処理ガスが、二重配管の内筒に導入され、次いで熱交換器、反応容器の順に導入され、処理ガスが二重配管の外筒から排出されるように、二重配管、熱交換器および反応容器が接続されている請求項 1 ～ 7 のいずれかに記載の反応装置。

【請求項 9】 被処理ガスを、二重配管の内筒、熱交換器、ヒーターを備えた反応容器、熱交換器、二重配管の外筒の順に流通させ、被処理ガスを反応容器に導入される前に前記ヒーターによって加熱することにより、前記反応容器内部の温度のガス流通方向における温度差を調整することを特徴とする反応方法。

【請求項 10】 前記温度差を 50℃以内に調整する請求項 9 に記載の反応方法。

## 【発明の詳細な説明】

【0001】

## 【発明の属する技術分野】

本発明は、熱交換一体型反応装置およびそれを用いる反応方法に関する。

【0002】

## 【従来の技術】

従来の熱交換器と触媒反応器が一体化された装置としては、例えば、

- (1) 特開昭64-51126号公報に記載されている高温触媒装置、
  - (2) 特開昭54-126671号公報に記載されているハニカム構造体に触媒を被覆させた触媒酸化装置、
- 等が知られている。

【0003】

前記(1)の高温触媒装置は、装置自身を比較的コンパクトにすることは可能であるが、処理前後のガスの流路が別々であるため、ガスの配管が複数必要であると共に、装置周りのスペースを必要とする。また、反応器に充填された触媒層を通過した処理ガスが熱交換器を通過する前に、反応器と熱交換器の接続部分に接触するため、接続部分が高温になる可能性があり、接続部分と熱交換器をシールするためのパッキンなどの材質を高温耐熱性があるものを選定しなければならない。また、前記(1)の高温触媒装置は、フランジ部の焼き付けを生ずるという課題も残している。

【0004】

また、前記(2)のハニカム構造体に触媒を被覆させた触媒酸化装置は、熱交換部分に触媒が被覆されていることによって熱効率は改善されているものの、触媒交換時には装置全体を分解しなければならず、コストおよびメンテナンスに課題がある。

また、熱源に電気炉などのヒーターを用いる場合、剤充填層は処理ガス流通方向に温度分布がつくという現象が発生する。この現象は、プレヒーター（余熱器）を設置したとしても効果的に温度分布をなくすように改善することは難しく、反応器に充填した触媒や反応剤を有効に用いることができない場合が多い。

## 【 0 0 0 5 】

## 【発明が解決しようとする課題】

本発明はこのような背景の下、反応容器の温度分布をガス流通方向に均一に保つことができ、熱エネルギーの回収効率を向上させることができると同時に、装置内のフランジ部の過熱を防止することができ、フランジには通常の低温用材質からなるシール材を使用することができる、コンパクトな熱交換器一体型の反応装置およびそれを用いる反応方法を提供することを課題とする。

## 【 0 0 0 6 】

## 【課題を解決するための手段】

本発明者らは、前記の課題を解決すべく鋭意検討した結果、例えば、外筒内に熱交換器と、ヒーターを備えた反応容器とを具備し、前記熱交換器の上部が前記反応容器と接続され、前記熱交換器の他端部および外筒の下部がフランジにより固定され、前記熱交換器の他端部に被処理ガスの導入および処理ガスの排出用の二重配管が接続されてなる反応装置を用いることにより、前記の課題を解決できることを見出し本発明を完成するに至った。本発明は以下の（１）～（１０）に関する。

## 【 0 0 0 7 】

（１）外筒内に熱交換器と、ヒーターを備えた反応容器とを具備し、前記熱交換器の上部が前記反応容器と接続され、前記熱交換器の他端部および外筒の下部がフランジにより固定され、前記熱交換器の他端部に被処理ガスの導入および処理ガスの排出用の二重配管が接続されてなる反応装置。

（２）熱交換器がシェルチューブ式熱交換器である上記（１）に記載の反応装置

。

（３）外筒が前記フランジを備え、該フランジが接続する外筒の他端部にアイボルト取り付け部を備えている上記（１）または（２）に記載の反応装置。

## 【 0 0 0 8 】

（４）反応容器が内部にフィンを備えている上記（１）～（３）のいずれかに記載の反応装置。

（５）二重配管が内筒と外筒により形成されている上記（１）～（４）のいずれ

かに記載の反応装置。

(6) 二重配管の内筒内部および／または内筒と外筒の間にフィンを備えている上記(1)～(5)のいずれかに記載の反応装置。

(7) 二重配管の外筒に放熱板を備えている上記(1)～(6)のいずれかに記載の反応装置。

#### 【0009】

(8) 被処理ガスが、二重配管の内筒に導入され、次いで熱交換器、反応容器の順に導入され、処理ガスが二重配管の外筒から排出されるように、二重配管、熱交換器および反応容器が接続されている上記(1)～(7)のいずれかに記載の反応装置。

(9) 被処理ガスを、二重配管の内筒、熱交換器、ヒーターを備えた反応容器、熱交換器、二重配管の外筒の順に流通させ、被処理ガスを反応容器に導入される前に前記ヒーターによって加熱することにより、前記反応容器内部の温度のガス流通方向における温度差を調整することを特徴とする反応方法。

(10) 前記温度差を50℃以内に調整する上記(9)に記載の反応方法。

#### 【0010】

##### 【発明の実施の形態】

以下、本発明について詳しく説明する

本発明の反応装置は、外筒内に熱交換器と、ヒーターを備えた反応容器とを具備し、前記熱交換器の上部が前記反応容器と接続され、前記熱交換器の他端部および外筒の下部がフランジにより固定され、前記熱交換器の他端部に被処理ガスの導入および処理ガスの排出用の二重配管が接続されてなる反応装置である。

本発明の反応装置は、例えば半導体デバイスや液晶ディスプレイデバイス等の製造工程等におけるドライエッチングおよびクリーニング排ガスを分解処理するために用いることができる。また、キャビネット用パージガスラインや手術室から排出される余剰麻酔ガス中に含まれる亜酸化窒素を分解除去するための処理装置として用いることができる。

#### 【0011】

図1は、本発明の熱交換器一体型反応装置の一例を示したものである。図1に

示した反応装置は、ヒーター2を備えた反応容器1、パンチングメタル3、フランジ4、シェルチューブ式熱交換器5、外筒6、二重配管7、流通口8、アイボルト取り付け部9から概略構成される。図1に示した反応装置において、被処理ガスは、内筒と外筒により形成された二重配管7の内筒に導入され、円筒状のシェルチューブ式熱交換器5に導かれる。シェルチューブ式熱交換器とは、多数の小口径直管の両端を2枚の円板に挿入固定したものを1つのシェル内に収めたもので、広い伝熱面を小容積に納めることができる特徴を有している熱交換器のことをいう。本発明の反応装置は、通常の処理前と後のガスが向流で流れ、その間に熱交換するタイプのものでもよいが、熱交換器がシェルチューブ式熱交換器であることが好ましい。

#### 【0012】

次に円筒状の熱交換器5の中心部から入った被処理ガスは、シェル内のバップルで仕切られた流路を円筒の外側に向かって流れ、再び中心部に流れる。図1中の矢印はこのガスの流れを示したものであり、被処理ガスは熱交換器5の内部でこのガスの流れを繰り返し、図1中ではジグザグに左右に流れながら熱交換器5の中を徐々に上昇して反応容器1に向かって行く。このとき、反応容器1で加熱処理された温度の高い処理ガスが流れるチューブ壁面に処理前のガス（被処理ガス）が接触するため、処理前のガス（被処理ガス）がジグザグに進んで反応容器1に到達するまでに次第に処理前後のガスの間で熱交換が行われる。シェルチューブ式熱交換器5を流れる処理前後のガスは、シェル側とチューブ側のどちらを流れてもよいが、図1で示した装置では、シェル側に処理前のガス（被処理ガス）、チューブ側に処理後のガスが流れることを表している。

#### 【0013】

シェル内のバップルで仕切られてジグザグに左右に流れ、熱交換された処理前のガス（被処理ガス）は、熱交換器5の垂直方向上部の反応容器1との間にある流通口8から反応容器1に向けて排出される。流通口8から排出されたガスは、反応容器1に対して熱交換器5の他端部（図1中で垂直方向下部）にフランジ4を有する外筒6とヒーター2の間（反応容器1の外側空間）を流れ、ここでさらに加熱されて、外筒6の天井部分（図1中、パンチングメタル3の上部）から反

応容器 1 に入り、反応容器 1 に予め充填された触媒等によって反応処理される。次いで、反応容器 1 から出た処理後のガスは、熱交換器 5 のチューブを経由して図 1 中では垂直方向下部に向かって流れ、ここで前述したように、処理前のガスとの間で熱交換されてガス温度が低下させられた後、二重配管 7 の外筒側に入り、さらに内筒側を流れる処理前のガス（被処理ガス）との間で熱交換されて系外に排出される。

## 【 0 0 1 4 】

本発明の反応装置を用いれば、先に述べた処理ガスの流れによって処理前後のガスとの間で熱交換を効率的に行うことができるので、例えば、反応容器 1 に充填した触媒層の処理ガス流通方向に対する温度分布を従来の反応器に比べ著しく改善し、触媒層の温度差を 5 0 ℃ 以下に保つことができる。反応容器 1 に充填した剤（触媒）の流路方向の温度分布の温度差を 5 0 ℃ 以下の均一に保つためには、効率のよい熱交換が必須であるが、本発明の反応装置を用いることにより、

（１）被処理ガスを熱交換器 5 に導入する前に二重配管 7 にて予め熱交換できること、

（２）熱交換器 5 と反応容器 1 が一体化しているため、反応容器 1 における反応（処理）の前後のガス間での熱交換がスムーズかつ効率がよいこと、

（３）反応容器 1 がヒーター 2 を有しているため、被処理ガスが反応容器 1 に導入される前に直接ヒーター 2 に接触させることができ、被処理ガスを反応容器 1 の設定温度により近づけた状態で反応容器 1 に導入できること、

等の理由によって、より効率のよい熱交換が実現できる。

## 【 0 0 1 5 】

本発明の反応装置は、外筒がフランジ 4 を備え、該フランジが接続する外筒 6 の他端部にアイボルト取り付け部 9 を備えていることが好ましい。

反応容器 1 が内部にフィンを備えていることが好ましく、反応容器から中心部に向かってフィンを設置することは、充填された反応剤や触媒の温度をより均一にする効果がある。使用する条件にもよるが、特に反応容器の直径が 1 0 c m より大きいものほど有効である。

## 【 0 0 1 6 】



二重配管7は、内筒と外筒により形成されていることが好ましく、反応装置に導入するガス配管を二重配管構造とすることは、単に熱効率を上げるだけでなく、プレヒートするための余熱器等を省くことができる等、反応器周りの省スペース化を図ることとしても重要な要素である。

【0017】

内筒と外筒の間に、フィンを備えていることが好ましく、フィン設けることによって熱交換の効率をさらに上げることができる。

処理後のガスが流れる二重配管7の外筒には、放熱板を取り付けることが好ましく、放熱板によって熱放出の効率を上げ、系外に排出する排ガス温度をさらに下げることができる。

【0018】

反応容器の温度分布の均一化が図れることによって、反応容器に充填した触媒や反応剤を目標とする温度に広い範囲ですることができ、触媒や反応剤の有効利用率を向上させることができ、反応率の向上やコストダウンをすることができる。

【0019】

熱交換器5とヒーターを有する反応容器1に対し、垂直方向下部にフランジ4を備えた外筒6を設け、反応容器1とフランジ4を離すことによって、フランジ4の発熱を押さえることが可能となり、例えば、450℃の高温使用時においても、フランジ4の温度は100℃以下にすることができる。従来の装置では反応部に近いフランジで焼き付けが生じていたが、本発明の熱交換一体型反応装置を用いることによって従来の問題点であったフランジの焼き付けを防止することが可能となった。従って、カーボンやメタルパッキン等の特殊なシール材（パッキン）を用いることなく、100℃前後の温度で通常用いることができる低温用のバイトンのOリング等のシール材（パッキン）を使用することができる。

【0020】

また、外筒6の下部にフランジ4がある利点としては低温用のシール材を選定することができるということの他に、外筒に取り付ける断熱材の脱着操作をスムーズに行うことができるため、メンテナンスがしやすいことが挙げられる。さら

に、外筒 6 の天井部にはアイボルト取り付け部 9 があり、触媒等の交換時には、このアイボルト取り付け部 9 にアイボルトを取り付け、熱交換器 5 と一体化した反応容器 1 から外筒 6 を外すことにより、スムーズに触媒等の交換することが可能である。

#### 【 0 0 2 1 】

ヒーターを有する反応容器 1 の使用温度は、 $50 \sim 700^{\circ}\text{C}$  の範囲に設定することができ、好ましくは  $100^{\circ}\text{C} \sim 500^{\circ}\text{C}$ 、さらに好ましくは  $250^{\circ}\text{C} \sim 450^{\circ}\text{C}$  であることがよいが、反応の種類によって適宜選択することができる。

反応容器 1 に充填する触媒並びに反応剤は、反応の種類によって自由に選択することができ、特に限定されない。また、剤の充填量は反応条件によって反応容器および熱交換器の長さや直径を自由に選択することが可能で、特に限定されない。また、反応容器 1 に剤充填の中心部の温度の均一化を図るため、剤充填のヒーターを有する部分より反応容器 1 の中心方向に伝熱のためのフィンを設置し、さらなる温度分布の均一化をすることができるが、フィンの枚数や長さには特に制限はなく、反応条件によって自由に選択することができる。

#### 【 0 0 2 2 】

また、本発明の反応方法は、被処理ガスを、二重配管の内筒、熱交換器、ヒーターを備えた反応容器、熱交換器、二重配管の外筒の順に流通させ、被処理ガスを反応容器に導入される前に前記ヒーターによって加熱することにより、前記反応容器内部の温度のガス流通方向における温度差を調整することを特徴とする反応方法である。

本発明の反応方法を用いれば、反応容器のガス流通方向に対する温度分布における温度差を  $50^{\circ}\text{C}$  以下の均一とすることができるため、各種分解反応、並びに合成反応に用いることができる。

#### 【 0 0 2 3 】

図 3 は、反応容器内の温度分布について、ヒーター温度設定一定でのガス量変更時の温度分布の測定結果を示したものである。反応装置は図 1 で示した本発明の反応装置を用い、フランジから反応容器までの距離が約  $190\text{ mm}$  であり、剤が充填されているのは  $190\text{ mm}$  から上部となる。また、温度（内部温度）の測

定は、反応容器水平方向の中心部での温度を測定した。反応装置は、本発明の熱交換器一体型の40L用のフィン18枚有する反応装置を用い、反応剤を充填した後、ヒーターの温度設定を600℃一定とし、N<sub>2</sub>ガス流量を40、80、100L/minと変化させ、外筒の下部フランジ部を0mmとした時の反応容器内の垂直方向の温度分布を測定した。図3に示すように、反応容器内の垂直方向の温度分布は均一となった。

## 【0024】

図4は、反応容器内の温度分布について、ガス量一定でのヒーター温度設定変更時の温度分布の測定結果を示したものである。図3の場合と同様、反応装置は図1で示した本発明の反応装置を用い、フランジから反応容器までの距離が約190mmであり、剤が充填されているのは190mmから上部となる。また、温度（内部温度）の測定は、反応容器水平方向の中心部での温度を測定した。反応装置は、反応剤を充填した後、N<sub>2</sub>ガス流量を80L/minで一定とし、ヒーターの温度設定を450℃、600℃と変化させ、外筒の下部フランジ部を0mmとした時の反応容器内の垂直方向の温度分布を測定した。図4に示すように、反応容器内の垂直方向の温度分布は均一となった。

## 【0025】

一方、図2は従来の外部加熱式の40L用の反応装置を示したものである。図2の反応装置は、反応容器1、ヒーター2、パンチングメタル3およびフランジ4から概略構成される。図5は反応容器内の温度分布の測定結果を示したものである。例えば、反応剤を充填した後、ヒーターの温度設定を600℃とし、余熱器で流通ガスを500℃に加熱したN<sub>2</sub>ガス流量80L/minを流通させ、反応器の目皿を0mmとした時の反応容器内の温度分布を測定した。温度分布は、反応容器水平方向の中心部での温度を測定した。反応容器内の温度分布は目皿からの位置が約200mm付近で最大値を示し、入口および出口温度が低い一般的な温度分布となった。

## 【0026】

## 【発明の効果】

本発明によれば、シェルチューブ式熱交換器と、ヒーターを有する反応容器を

一体化させること、並びに反応装置に導入するための配管が、処理前のガスと処理後のガスを向流で流すための内筒と外筒により形成された二重配管構造であることにより、より熱交換の効率を上げると共に、反応容器がヒーターを有していることから、反応容器内のガス流通方向の温度分布を均一化することによって、反応容器に充填した触媒や反応剤を目標とする温度に広い範囲ですることが可能となるため、触媒等を有効に利用することができる。また、熱交換器とヒーターを有する反応容器が一体化していること、反応装置に導入するための配管が、処理前のガスと処理後のガスを向流で流すための内筒と外筒により形成された二重配管構造となっているため、反応装置の小型化と反応装置周りの省スペース化を図ることができる。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明の熱交換器一体型反応装置の一例を示す概略図である。

【図2】 従来の外部加熱式の反応装置の一例を示す概略図である。

【図3】 本発明の熱交換器一体型反応装置の温度設定変更時の反応容器の温度分布図の一例を示している。

【図4】 本発明の熱交換器一体型反応装置のガス流量変更時の反応容器の温度分布図の一例を示している。

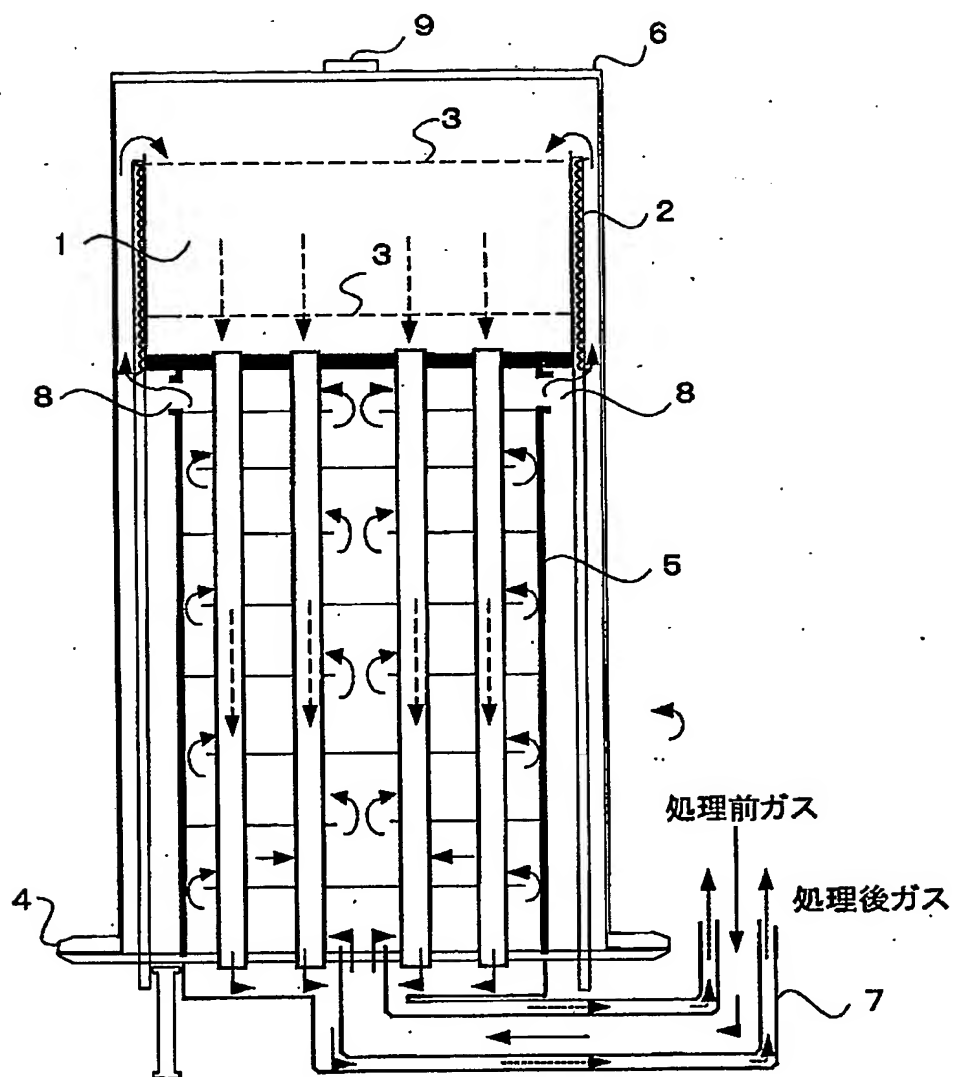
【図5】 従来の外部加熱式の反応装置の剤の温度分布図の一例を示している。

#### 【符号の説明】

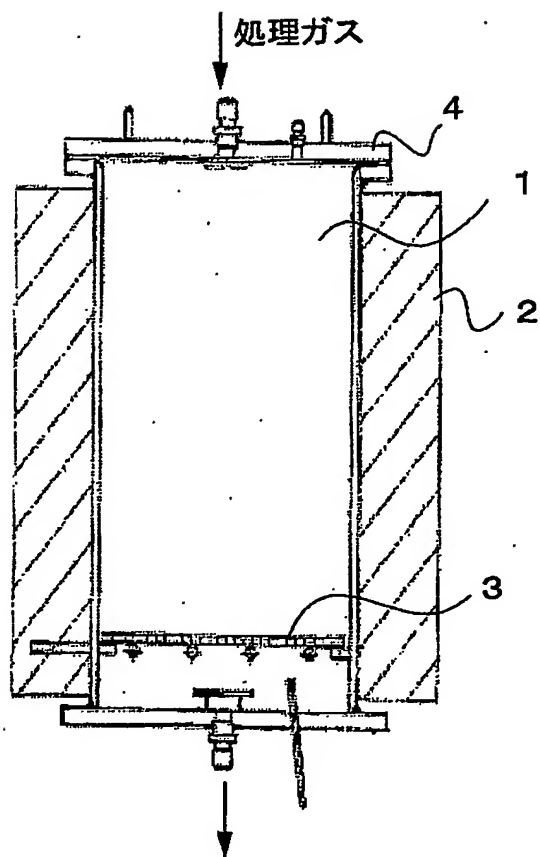
- 1 反応容器
- 2 ヒーター
- 3 パンチングメタル
- 4 フランジ
- 5 熱交換器
- 6 外筒
- 7 二重配管
- 8 流通口
- 9 アイボルト取り付け部

【書類名】 図面

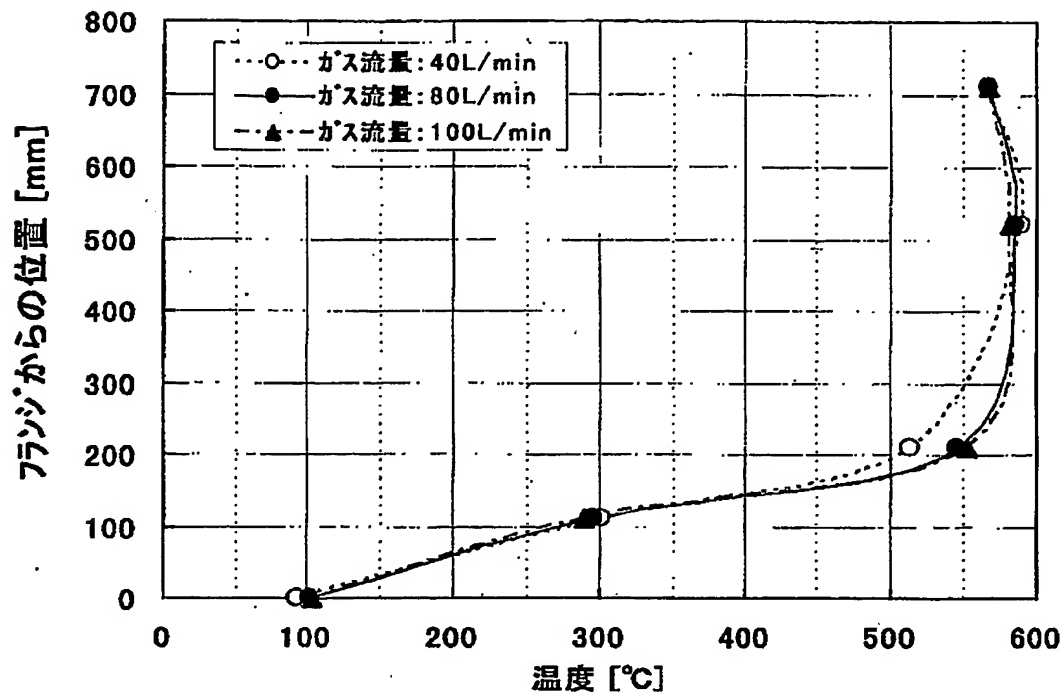
【図 1】



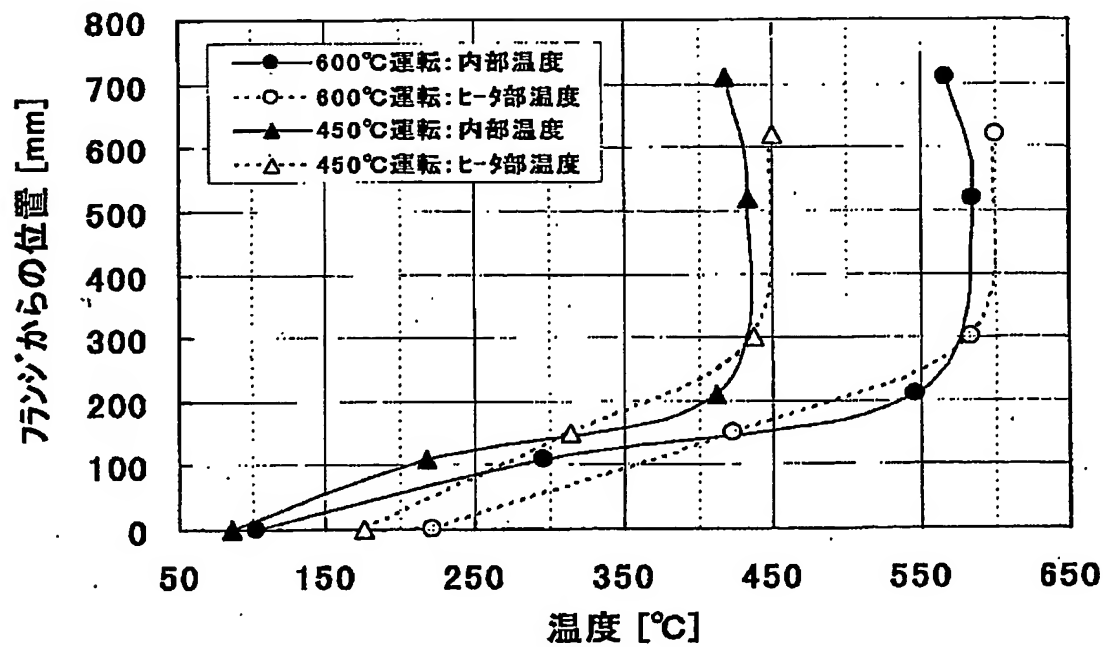
【図 2】



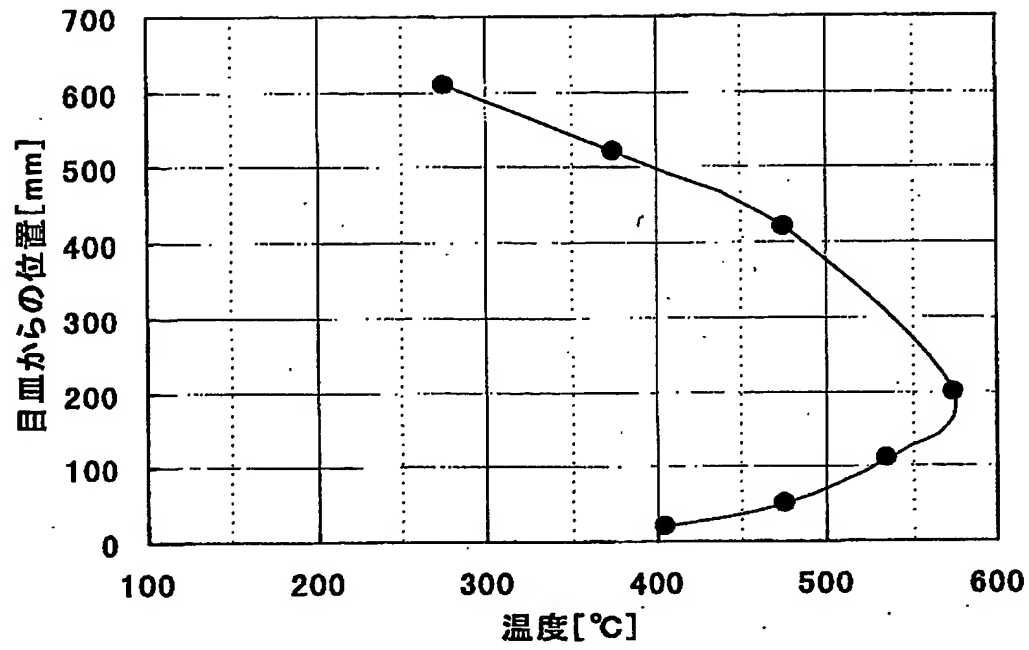
【図 3】



【図 4】



【図 5】





【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 反応容器の温度分布をガス流通方向に均一に保つことができ、熱エネルギーの回収効率を向上させることができる熱交換器一体型の反応装置およびそれを用いる反応方法。

【解決手段】 外筒内に熱交換器と、ヒーターを備えた反応容器とを具備し、前記熱交換器の上部が前記反応容器と接続され、前記熱交換器の他端部および外筒の下部がフランジにより固定され、前記熱交換器の他端部に被処理ガスの導入および処理ガスの排出用の二重配管が接続されてなる反応装置。

【選択図】 なし

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2002-085149
受付番号	50200421612
書類名	特許願
担当官	第六担当上席 0095
作成日	平成14年 3月27日

<認定情報・付加情報>

【提出日】	平成14年 3月26日
-------	-------------

出 願 人 履 歷 情 報

識別番号 [000002004]

1. 変更年月日 1990年 8月27日

[変更理由] 新規登録

住 所 東京都港区芝大門1丁目13番9号

氏 名 昭和電工株式会社

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**